(1) Veröffentlichungsnummer:

0 191 196 A1

- **EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG**
- (21) Anmeldenummer: 85201787.0
- 2 Anmeldetag: 05.11.85

(5) Int. Cl.⁴: **B27K 3/15** , B27K 3/08 , G10C 3/06 , G10D 3/02

- 3 Priorität 13.02.85 DE 3504898
- Veröffentlichungstag der Anmeldung: 20.08.86 Patentblatt 86/34
- Benannte Vertragsstaaten: AT CH DE FR GB IT LI

- Anmelder: Rütgerswerke Aktiengesellschaft Mainzer Landstrasse 217
 D-6000 Frankfurt a.Main 1(DE)
- Erfinder: Giebeler, Eberhard, Dr. Langensiepenstrasse 30
 D-4330 Mülheim (Ruhr)(DE)
 Erfinder: Wilhelm, Gerhard, Dr. Stahlbühlring 80
 D-6802 Ladenburg(DE)
- (S) Vertahren zur Vergütung von Holz sowie Verwendung des vergüteten Holzes.
- (5) Holz, das sich insbesondere zur Herstellung von Klangkörpern eignet, wird nach einem Verfahren vergütet, bei dem kurz vor oder während einer thermischen Behandlung unter Druck geringe Mengen reaktiver Bausteine duroplastischer Polymere in das Holz eindringen.

5

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Vergütung von Holz hinsichtlich seiner Dimensionsstabilität und seiner Resonanzeigenschaften.

Diese Eigenschaften sind von besonderer Bedeutung, wenn Holz zur Herstellung von Klangkörpern, wie Musikinstrumenten, Gehäusen von hochwertigen elektroakustischen Anlagen oder Verkleidungsplatten von Konzertsälen verwendet wird. Für diese Verwendungszwecke wird einerseits nur lange gelagertes, besonders ausgesuchtes sog. Resonanzholz mit möglichst gleichmäßigem Aufbau der Jahresringe eingesetzt. Dieses Holz ist sehr rar und teuer. Andererseits versucht man, die Qualität normaler Hölzer durch Lackieren, Imprägnieren oder Behandeln zu verbessern. Lackieren oder Imprägnieren von Holz hat nur einen mäßigen Einfluß auf die Dimensionsstabilität und verschlechtert zudem die Resonanzeigenschaften, weil die Poren und Kapillaren des Holzes verstopft und damit die Klangeigenschaften reduziert werden. Beim Behandeln von Holz, etwa gemäß DE-PS 878 553 oder insbesondere EP-B-0 018 446 wird zwar die notwendige Dimensionsstabilität auch dann erhalten, wenn nicht besonders ausgewähltes Holz ohne vorherige Alterung behandelt wird, die Klangeigenschaften aber werden im wesentlichen nur insoweit verbessert, als intolge geringerer Schrumpf- und Quelleffekte bei wechselnder Feuchtigkeitseinwirkung die Resonanzeigenschaften konstanter bleiben.

Es ist daher Aufgabe der vorliegenden Erfindung, ein Verfahren zur Vergütung von Holz bereitzustellen, bei dem bei normalem, nicht vorgealtertem Holz ein von wechselnden Witterungseinflüssen nicht beeinträchtigtes, verbessertes Resonanz- und Klangverhalten erzielt wird, das dem alter und ausgesuchter Resonanzhölzer entspricht

Die Aufgabe wird gelöst durch ein Verlahren gemäß Ansprüche 1 bis 6. Das gemäß dem Verfahren vergütete Holz wird erfindungsgemäß zur Herstellung von Klangkörpem verwendet.

Bei der Alterung von Holz laufen zwei Prozesse ab: Gewisse Holzbestandteile, vorwiegend Hemicellulosen, werden abgebaut. Da diese Stoffe hauptsächlich für das Quellverhalten verantwortlich sind, verbessem sich dadurch

klimabedingte Schwankungen.

Zudem tritt eine gewisse Verhärtung des Holzes auf. Bei Holz mit guten Resonanzeigenschaften verlaufen diese Prozesse in der Art, daß sich gleichmäßige Kapillaren mit verstärkten Wandungen ausbilden, die letztendlich für die gleichförmigen, nahezu ungedämpften Schwingungen und damit für die guten Klangeigenschaften ausschlaggebend

Es wurde gefunden, daß sich dieser langjährige, natürliche Prozeß künstlich beschleunigen und gezielt steuern läßt, wenn man im Reaktor parallel verlaufend einen Abbau von Holzbestandteilen und einen Aufbau von Polymeren in den Kapillaren des Holzes bewirkt, wobei das sich bildende Polymer in so geringen Mengen entsteht, daß es lediglich die Wandungen der Kapillaren verstärkt, keinesfalls aber die Kapillaren verstopft; d.h. es dürfen auf den Kapillarwandungen lediglich mono- oder oligomolekulare Schichten an Polymer entstehen, Schichten, die so dünn sind, daß sie helfen, Schwingungen zu übertragen, ohne daß eine zusätzliche unerwünschte Klangdämpfung ent-

Erzielt wird dies erfindungsgemäß dadurch, daß in die Kapillarräume des Holzes geringe Mengen reaktiver Bausteine eingebracht werden, die miteinander und mit Bestandteilen des Holzes zu duroplastischen Polymeren reagieren können und daß diese Bausteine in einer gleichzeitig

oder kurz darauf erfolgenden thermischen Behandlung unter Druck zu den entsprechenden Polymeren reagieren, während bei der gleichen Behandlung andere, instabile Holzbestandteile abgebaut werden.

Ausgangsmaterial für das erfindungsgemäße Verfahren ist normales riffreies Kemholz, dessen Wassergehalt nicht mehr als 10 Gew.-% beträgt. Der bevorzugte Wassergehalt liegt bei 2 bis 5 Gew.-%. Die Holzart ist nicht von Bedeutung, so daß aus billigem Pappel-, Fichten- oder Kiefernholz hochwertiges vergütetes Holz hergestellt werden kann. Auch an die Güte des Ausgangsholzes werden, abgesehen davon, daß es keine groben Fehlstellen wie etwa Astlöcher haben darf, keine besonderen Anforderungen gestellt.

Reaktive Bausteine duroplastischer Polymere sind monomere chemische Substanzen, die in der Wärme mit anderen reaktiven Bausteinen oder mit Holzinhaltsstoffen zu duroplastischen Polymeren reagieren können.

Beispiele für derartige Substanzen, die mit Holzinhaltsstoffen reagieren können, sind Aldehyde wie Form- oder Ketone, Epichlorhydrin, Maleinsäure oder -anhydrid. Acrylsäure,

Andere reaktive Bausteine wie Harnstoff, Furfuryfalkohol, Melamin oder Phenol bzw. Phenolderivate wie Kresole oder Xylenole benötigen als Coreaktanten einen Aldehyd oder ein Keton. In diesem Falle müssen beide miteinander umzusetzenden Bausteine in die Kapillaren des Holzes eingebracht werden. Als bevorzugte reaktive Bausteine werden Phenol und Formaldehyd eingesetzt.

Zum Einbringen der Reaktionspartner in das Holz gibt es verschiedene Möglichkeiten: Das Holz kann mit einer Lösung eines reaktiven Bausteins in Wasser oder einem organischen Lösemittel getränkt und anschließend getrocknet werden oder das Holz wird in einem engen abgeschlossenen Volumen, etwa in eine Folie eingewickelt, zusammen mit einem oder mehreren gasförmigen und/oder verdampfenden Reaktanten gelagert, so daß dieser oder diese durch Diffusion in die Kapillaren des Holzes eindringen. Beide Methoden sind sehr zeitraubend. Es ist daher bevorzugt, den oder die reaktiven Bausteine in einem Reaktor über die Dampfphase in das Holz einzubringen. Dies kann dadurch erfolgen, daß an den mit Holz beschichteten Reaktor ein Vakuum angelegt und danach entspannt wird, wobei das dazu in den Reaktor eingeleitete Gas entweder ein gasförmiger reaktiver Baustein ist oder ein einen reaktiven Baustein enthaltendes inertes Trägergas. In der einfachsten Ausführung werden die reaktiven Bausteine gleichzeitig mit dem Holz in den Reaktor eingegeben, verdampfen während der Aufheizphase des Reaktors und dringen, unterstützt durch den aufgebrachten Druck, in die Kapillaren

Werden zwei miteinander reagierende reaktive Bausteine duroplastischer Polymere in das Holz eingebracht, so können diese bei Temperaturen unterhalb ihrer Reaktionsschwelle, gemeinsam oder getrennt eingebracht werden. Bei den bevorzugt verwendeten reaktiven Bausteinen Phenol und Formaldehyd wird eine besonders intensive Vergütung dadurch erreicht, daß in einem ersten Behandlungsschritt Holz mit etwa 2 Gew.-% Phenol im Reaktor auf etwa 80°C erwärmt und dann bis zu einem Druck von 25 bis 100 mbar evakuiert wird, nach etwa 15 min mit Stickstoff entspannt, emeut evakuiert und nach weiteren 10 bis 15 min mit einem mit bis zu 10 Vol.% mit Formaldehydgas beladenen Stickstoff entspannt wird. Danach wird der Reaktor auf eine Temperatur im Bereich von 140 bis 200°C erhitzt und durch Einpressen von vorgewärmten Stickstoff ein Enddruck von 3 bis 15 bar eingestellt. Nach Erreichen der gewün-

schten Druck- und Temperaturwerte werden diese Reaktionsbedingungen noch 0,5 bis 8 h aufrechterhalten. Danach wird entspannt und das vergütete Holz ist nach dem Abkühlen direkt zur weiteren Bearbeitung zur Herstellung von Klangkörpern einsetzbar.

Während der Druck-Wärme-Behandlung werden hydrolysierende Bestandteile des Holzes, vorwiegend Hemicellulosen abgebaut. Als Reaktionsprodukte entstehen dabei u.a. auch Säuren, wie z.B. Ameisen- oder Essigsäure, die ihrerseits die Kondensationsreaktion des Phenols mit Formaldehyd katalysieren. Dadurch läuft diese Kondensationsreaktion bevorzugt an den Kapillarwandungen ab. Andere Reaktionsprodukte wie Furturylalkohol oder phenolische Komponenten können ihrerseits wieder mit dem in die Kapillaren eingebrachten Formaldehyd reagieren und vernetzen. Dadurch, daß diese Stoffe unter den erfindungsgemäßen Bedingungen bereits vernetzen, solange sie sich noch in den Wandungen der Holzfasem und -Kapillaren befinden, tragen sie ebenfalls dazu bei, diese Kapillarwandungen zu verstärken und zu verhärten und damit die Schwingungseigenschaften zu verbessem. Es bildet sich somit ein vergütetes, verstärktes Holz, das von Witterungsschwankungen unabhängig, in seinen klanglichen Eigen-schaften dem alter, guter Musikinstrumente entspricht. Diese akustischen Eigenschaften können noch verbessert werden, wenn während der Druck- und Temperaturbehandlung Schwingungen im Bereich von 16 bis 4000 Hertz auf das Holz einwirken.

Die nachfolgenden Beispiele zeigen die Verbesserungen der Klangeigenschaften erfindungsgemäß vergüteter Hölzer, und damit die besondere Eignung der so vergüteten Hölzer zur Herstellung von Klangkörpern.

Beispiel 1

3 mm starke Fichtensägefurniere in den Abmessungen 600 x 300 mm mit Maserungsverlauf parallel zur Längsrichtung und senkrecht zum Querschnitt (Radialschnitt) und ca. 2 mm Abstand von Jahresring zu Jahresring werden auf 5 % Feuchte vorgetrocknet und in einem Autoklaven innerhalb 15 min auf 170°C erhitzt. Als Wärmeträger dient erhitzter Stickstoff, der auf 9 bar komprimiert ist. Gleichzeitig mit dem Holz werden in zwei getrenten Schalen 37 %ige Formaldehydlösung und Phenol in ausreichenden Mengen vorgelegt, um eine gesättigte Gasraumbeladung zu erzielen. Nach weiteren 45 min wird der Druck innerhalb von 15 min auf Atmosphärendruck reduziert, die Kreistauffahrweise des Inertgases unterbrochen und die Proben dem Autoklaven entnommen. (Probe 1.1)

Nach Lagerung (14 Tage bei 20°C und 60% Luftfeuchte) werden die Proben mit unbehandelten Vergleichsproben verglichen. Die Vergleichsproben stammen jeweils aus dem benachbarten Radialschnitt und sind damit in der Maserung und allen anderen maßgeblichen Eigenschaften mit dem zur Vergütung verwendeten Ausgangsmaterial übereinstimmend. (Probe 1.2) Weiterhin werden die Proben mit solchen Proben verglichen, die der gleichen Temperatur- und Druckbehandlung unterworfen, aber nicht mit Phenol und Formaldehyd beladen worden waren.(Probe 1.3)

Die akustische Untersuchung der Proben wird in einem Biegeschwingungsmeßgerät in Anlehnung an DIN 53440 durchgeführt. Die Proben werden einseitig aufgespannt und über ein aufgeklebtes Metallplättichen elektromagnetisch in Schwingungen versetzt. Die freischwingende Länge beträgt 180 mm.

Ergebnis

30

35

20 Probe Dichte Resonanz-E-Modul E/Dichte Verlustfrequenz faktor (kg/m^3) $\cdot 10^{10} (N/m^2) \cdot 10^6 (m^2/s^2)$ (Hz) 25 1.1 480 112 1,36 28,3 0,0082 697 1,38 28,7 0,0089 1955 1,37 28,5 0,012 1.2 465 109 1,26 27,1 0,0085 687 1,28 27,4 0,0086 30 1920 1,26 27,1 0,01 1.3 450 106 1,18 26,2 0,0092 657 1,15 25,5 0,011 1835 1,14 25,3 0.013

Die thermisch behandelte und mit reaktiven Bausteinen duroplastischer Polymere beladene Probe (1.1) erfährt eine Dichteerhöhung um etwa 2 %. Der Biegeelastizitätsmodul ist um 10 - 20 % gestiegen. Der Verlustfaktor wird im Vergleich zur unbehandelten Probe 1.2 leicht verbessert. Das für die Schwingungswellenausbreitungsgeschwindigkeit maßgebliche Verhältnis Elastizitätsmodul/Dichte ist bei Probe 1.1 am höchsten. Ebenfalls sind die Resonanzfrequenzen zu höheren Werten hin verschoben.

Beim Klopfen an die Proben (Klopfversuch) klingt Probe 1.1 gegenüber den Proben 1.2 und 1.3 heller und ungedämpfter. Dieser psychoakustische Effekt ist auch dann wahrnehmbar, wenn entsprechend behandelte Hölzer zu Resonanzdecken an Böden von Streich- und Zupfinstrumenten verarbeitet werden. Entsprechend hergestellte Instrumenten entsprechen in ihrer Klangqualität hochwertigen, alten Instrumenten. Die Klangeigenschaften sind von Feuchtigkeits- und Witterungsänderungen nicht beeinflußt.

Beispiel 2

Analog Beispiel 1.1 werden Holzproben thermisch in Gegenwart von Phenol und Formaldehyd behandelt, wobei jedoch die Behandlungsbedingungen wie folgt vaniert werden:

Behandlungszeit 75 min

10 Behandlungstemperatur 190°C

Druck 11 bar

Die so vergüteten Proben (2.1) werden mit unbehandelten Vergleichsproben (2.2) verglichen.

20

15

Probe	Dichte	Resonanz-	E-Modul	E/Dichte	Verlust-
	(kg/m ³)	frequenz (Hz)	·10 ¹⁰ (_{N/m} 2)		
2.1	435	114	1,23	28,3	
2.2	4.0.	715 1990	1,21 1,19 ·	27,8 27,3	0,0076 0,0098
2.2	400	111 696	1,06 1,05	26,5 26,2	0,009 0,0089
		1940	1,04	26	0,009 0,01

Tendenziell wird der gleiche günstige Vergütungsetfekt auf das Verhältnis E/Dichte wie in Beispiel 1 auch bei 190°C erzielt. Psychoakustisch klingt Probe 2.1 beim Klopfversuch heller als Probe 2.2, aber auch heller als Probe 1.1.

י יייטרות יבט ייטרייטרייי

Beispiel 3

Eine Probe Redwoodholz wird wie in Beispiel 1.1 behandelt (3.1). Die vergleichende akustische Untersuchung mit unbehandeltem Holz (3.2) ergibt die folgenden Werte:

50

45

55

60

Probe	Dichte	Resonanz- frequenz	E-Modul	E/Dichte	Verlust- faktor
	(kg/m ³)	(Hz)	$\cdot 10^{10} (N/m^2)$	$\cdot 10^6 (m^2/s^2)$	
3.1	435	86	0,84	19,3	0,0064
		544	0,85	19,5	0,013
		1509	0,83	19,1	0,0086
		2900	0,8	18,4	0,0096
3.2	400	74	0,56	14	0,0096
		478	0,6	15	0,0079
		1360	0,62	15,5	0,0076
		2620	0,58	14,5	0,0088

Beispiel 4

Eine Probe Zedernholz wird wie in Beispiel 1.1. behandelt.(4.1) Eine Vergleichsprobe wird der gleichen Druckund Temperaturbehandlung unterworfen, aber nicht in Gegenwart von Phenol und Formaldehyd. Nach dieser rein thermischen Vergütung wird die Vergleichsprobe 7 Tage bei 80°C in einer mit Phenol und Formaldehyd gesättigten Atmosphäre gelagert, um eine molekulare Adsorption dieser Komponenten zu ermöglichen. Anschließend wird diese Probe 8 h bei 120°C in einer gesättigten Phenol-, Formaldehyd- und Essigsäureatmosphäre erhitzt (Probe 4.2). Die Proben 4.1 und 4.2 werden mit unbehandelten Nullproben (4.3) akustisch verglichen. Die Biegeschwingungsmessungen werden an Prüfstäben der Abmessungen 3 mm x 10 mm x 200 mm durchgeführt.

35

25

40

45

50

55

60

Probe	Dichte	Resonanz- frequenz	E-Modul	E/Dichte	Verlust-
	(kg/m ³)	(Hz)	\cdot 10 10 (N/m 2)	·10 ⁶ (m ² /s ²)	faktor
4.1		319 875 1745 2970 295 800 1600 2725 4140 315 855 1710	0,670 0,630 0,665 0,72 0,525 0,482 0,507 0,537 0,550 0,626 0,590 0,610	17,8 16,8 17,7 19,2 14,0 12,8 13,5 14,3 14,6 16,47 15,5 16,0 16,5	0,0056 0,0089 0,0086 0,0090 0,005 0,0065 0,0080 0,0080 0,0370 0,0041 0,0067
				• -	0,0080

35

Beispiel 5

TIN -ED NIGHT 10041 1 .

Fichtenresonanzholz wird wie die Vergleichsprobe in Beispiel 2 bei 11 bar und 190°C 75 min lang behandelt,

a. in einer reinen Inertgasatmosphäre (Probe 5.1)

b. in einer mit 2 Vol % Formaldehyd angereicherten Inertgasatmosphäre (Probe 5.2)

Die akustische Auswertung im Vergleich mit einer unbehandelten Probe (5.3) ergibt bei der Biegeschwingungsmessung an Proben der Abmessung 4 mm x 10 mm x 200 mm folgende Werte.

45

50

55

60

Probe	Dichte	Resonanz- frequenz	E-Modul	E/Dichte	Verlust- faktor
	(kg/m ³)	(Hz)	$\cdot 10^{10} (N/m^2)$	$\cdot 10^6 (m^2/s^2)$	
5.1	455	543	1,09	24,0	0,011
		1480	1,02	22,4	0,010
•		2870	1,01	22,2	0,011
		4780	1,01	22,2	0,041
5.2	450	547	1,11	24,6.	0,007
·		1490	1,05	23,3	0,010
		2900	1,02	22,6	0,010
		4820	1,03	23,0	0,04
5.3	510	542	1,22	23,9	0,009
		1470	1,14	22,3	0,010
		2830	1,1	21,5	0,013
		4715	1,11	21,7	0,050

Ansprüche

Verfahren zur Vergütung von Holz, dadurch gekennzeichnet, daß während oder kurz nach dem Eindringen geringer Mengen reaktiver Bausteine duroplastischer Polymere in die Kapillaren des Holzes eine Behandlung bei Temperaturen von 140 bis 200°C und Drücken von 3 bis 15 bar erfolgt.

 Verlahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Wassergehalt des eingesetzten Holzes nicht mehr als 10 Gew.-% beträgt.

3. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß 0,1 bis 2,5 Gew.-%, bezogen auf das Trockengewicht des Holzes, an reaktiven Bausteinen duroplastischer Polymere in das Holz eingebracht werden.

 Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die reaktiven Bausteine mit dem Holz in den Reaktor eingebracht werden, während der Aufheizphase des Reaktors verdampfen und, unterstützt durch den aufgebrachten Druck, in die Kapillaren des Holzes eindringen.

5. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß Holz in einer Vakuumkammer unter Vakuum behandelt wird, der Druckausgleich mittels gasförmigem Furfurylalkohol, Phenol oder Phenolderivat oder mittels Phenol oder einem mit Phenol beladenen Trägergas erfolgt, danach erneut unter Vakuum behandelt wird, der zweite Druckausgleich mittels gasförmigem Aldehyd oder einem mit einem Aldehyd beladenen Trägergas erfolgt und danach das Holz während 0,5 bis 8 h bei Temperaturen von 140 bis 200°C und Drücken von 3 bis 15 bar behandelt wird.

6. Verfahren nach Anspruch 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß bei der Druck- und Temperaturbehandlung des Holzes Schwingungen im Bereich von 16 bis 4000 Hertz auf das Holz einwirken.

7. Verwendung des nach den Ansprüchen 1 bis 6 vergüteten Holzes zur Herstellung von Klangkörpern.

60

40

45

50

55

EUROPÄISCHER RECHERCHENBERICHT

	EINSC	HLÄGIGE DOKUMENTE	GE DOKUMENTE		
Kategorie	Kennzeichnung des	Dokuments mit Angabe, soweit erford der maßgeblichen Teile	orlich,	Betrifft	EP 85201787.0
Х]			Anspruch	ANMELDUNG (Int. Cl.4)
	$\frac{DL - B - 1}{CAL}$	13 061 (THE DOW CF	EMI-	1,4.5	
				. , .	B 27 K 3/15
		ne 1,4; Spalte 3, 1-14; Spalte 4, Ze		,	B 27 K 3/08
1	21-31; 8	palte 5, Zeilen 4	11en		G 10 C 3/06
					G 10 D 3/02
X	<u>GB - A - 1922</u>	A.D.1908 (BAEKELA	VID.		
	* Seite 1.	Zeilen 22 40. a	1	L,4,5	
	3, Zeile	n 19-38; Ansprüche	1.	- 1	
Ŷ			-,		
Y	DF - C - 5.1-				
-	DE - C - 545 (044 (BONDY)	þ	,5,7	
	seite 1,	Zeilen 31-43 *			
A	4 m ->	~~		1	
^ 4	AT - B - 311 C	33 (ERIKSSON)	h	, 5	
	* Ansprüche	1,5 *	- 1	,	RECHERCHIERTE
. _	_			-	SACHGEBIETE (Int. CI.4)
A E	P - A1 - 0 01	8 446 (RÜTGERSWERI	Œ) n	25	D 00
	" Anspruche	1-4 8. Spalts	_, _,	-,5	B 27 K
	Zeilen 6-	20 *		- 1	G 10 C
A D	F (2)			Ì	G 10 D
" S	E - C3 - 2 059 TUDIENGESELISC	. 164 (ÖSTERR. HAFT FÜR ATOMENER	1 ,	7	G 10 K
	* Anspruch *	ALLE FOR ATOMENER	GIE	1	
- 1	,				
	_				
			.		
					1
Der vorlieg	gende Recherchenbericht wu	de für alle Patentansprüche erstellt.	\dashv		
	echerchenort	Abschlußdatum der Recherch			
WIEN 21-0		21-05-1986			Prüfer
KATEGO on beso	PRIE DER GENANNTEN DO nderer Bedeutung allein b	KUMENTEN E : älte	'es Patent	dat	CHÄFER
Oderen \	Veröffortlichtung in Verb	indung mit einer D: in d	er Anmaia		as jedoch erst am oder eröffentlicht worden ist tes Dokument
ichtsche	gischer Hintergrund iftliche Offenbarung literatur	L: aus	andern Gr	ünden angefü	rtes Dokument · ihrtes Dokument
	literatur lung zugrunde liegende Ti	A · Mita			tfamilie, überein-

EPA Form 1503 03 62